

DIALOG(R)File 345:Inpadoc/Fam.& Legal Stat

(c) 2003 EPO. All rts. reserv.

18448336

Basic Patent (No,Kind,Date): US 20020197418 AA 20021226 <No. of Patents: 003>

MOLECULAR BEAM EPITAXY EFFUSION CELL FOR USE IN VACUUM
THIN FILM DEPOSITION AND A METHOD THEREFOR (English)

Patent Assignee: MIZUKAMI TOKIO (JP); SAITO TATEO (JP); KIDO JUNJI (JP)

Author (Inventor): MIZUKAMI TOKIO (JP); SAITO TATEO (JP); KIDO JUNJI (JP)

National Class: *427596000; 118723000; 118726000; 427248100; 427066000

IPC: *C23C-016/00;

CA Abstract No: 138(04)047657C

Language of Document: English

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applic No	Kind	Date
CN 1393575	A	20030129	CN 2002124923	A	20020626
JP 2003002778	A2	20030108	JP 2001192261	A	20010626
US 20020197418	AA	20021226	US 161248	A	20020531 (BASIC)

Priority Data (No,Kind,Date):

JP 2001192261 A 20010626

DIALOG(R)File 347:JAPIO

(c) 2003 JPO & JAPIO. All rts. reserv.

07508955 **Image available**

MOLECULAR BEAM CELL FOR DEPOSITING THIN FILM

PUB. NO.: **2003-002778** [JP 2003002778 A]

PUBLISHED: January 08, 2003 (20030108)

INVENTOR(s): MIZUKAMI TOKIO
 SAITOU TAKETOSHI
 KIDO JUNJI

APPLICANT(s): INTERNATIONAL MANUFACTURING & ENGINEERING SERVICES CO
LTD NIPPON BIITEC KK

KIDO JUNJI

APPL. NO.: 2001-192261 [JP 20011192261]

FILED: June 26, 2001 (20010626)

INTL CLASS: C30B-023/08; H01L-021/203

ABSTRACT

PROBLEM TO BE SOLVED: To generate evaporated molecules by realizing efficiency heat transfer in a crucible 1 even when a material 5 to be evaporated has low thermal conductivity thereby reducing the temperature gradient in the crucible 1 and efficiently evaporating the material 5 to be evaporated.

SOLUTION: When a thin film is grown on the surface of a solid material, a molecular beam source cell is used to generate the evaporated molecules by heating the material 5 to be evaporated so that the material melts and evaporates. The molecular beam source cell has a crucible 1 for accommodating the material 5 to be evaporated and a heating means for heating the material 5 to be evaporated accommodated in the crucible 1. In the crucible 1, a heat conducting medium 4 of pyrolytic.boron.nitride(PBN) being thermally and chemically stable and having a thermal conductivity higher than that of the material 5 to be evaporated is accommodated together with the material 5 to be evaporated.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-2778

(P 2 0 0 3 - 2 7 7 8 A)

(43) 公開日 平成15年1月8日(2003.1.8)

(51) Int. Cl. ⁷

識別記号

F I

テマコード (参考)

C30B 23/08

C30B 23/08

M 4G077

// H01L 21/203

H01L 21/203

M 5F103

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全5頁)

(21) 出願番号 特願2001-192261 (P 2001-192261)

(22) 出願日 平成13年6月26日(2001.6.26)

(71) 出願人 593191350

株式会社アイメス

神奈川県藤沢市桐原町3番地

(71) 出願人 397010974

株式会社日本ビーテック

茨城県ひたちなか市大字勝倉1316番地の3

(71) 出願人 501231510

城戸 淳二

山形県米沢市林泉寺3-12-16

(74) 代理人 100081927

弁理士 北條 和由

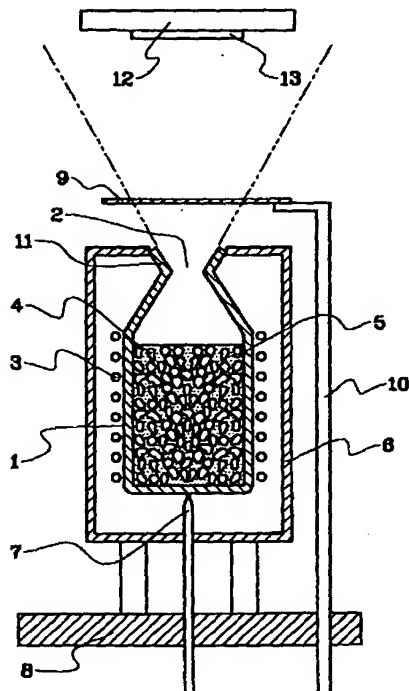
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 薄膜堆積用分子線セル

(57) 【要約】

【課題】 熱伝導率の低い蒸発材料5でも、坩堝1の中で効率良く伝熱できるようにし、これにより坩堝1の中での温度勾配を小さくし、蒸発材料5を効率よく蒸発して蒸発分子を発生する。

【解決手段】 分子線源セルは、蒸発材料5を加熱することにより、その蒸発材料5を溶融、蒸発して、固体表面に薄膜を成長させるための蒸発分子を発生するものである。この分子線源セルは、蒸発材料5を収納する坩堝1と、この坩堝1に収納された前記蒸発材料5を加熱する加熱手段とを有し、前記坩堝1に前記蒸発材料5と共に、熱的、化学的に安定しており、且つ前記蒸発材料5より熱伝導率の高いパイロリテック・ボロン・ナイトライド (PBN) からなる伝熱媒体4を収納したものである。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 蒸発材料 (5) を加熱することにより、その蒸発材料 (5) を熔融、蒸発して、固体表面に薄膜を成長させるための蒸発分子を発生する真空蒸着用分子線源セルにおいて、蒸発材料 (5) を収納する坩堝

(1) と、この坩堝 (1) に収納された前記蒸発材料 (5) を加熱する加熱手段とを有し、前記坩堝 (1) に前記蒸発材料 (5) と共に、熱的、化学的に安定しており、且つ前記蒸発材料 (5) より熱伝導率の高い伝熱媒体 (4) を収納したことを特徴とする薄膜堆積用分子線源セル。

【請求項 2】 伝熱媒体 (4) がパイロリティック・ボロン・ナイトライド、シリコンカーバイド、窒化アルミニウム等の高熱伝導材料からなることを特徴とする請求項 1 に記載の薄膜堆積用分子線源セル。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、蒸発材料を加熱することにより、その蒸発材料を熔融、蒸発して、固体表面に薄膜を成長させるための蒸発分子を発生する薄膜堆積用分子線源セルに関し、特に熱伝導率の低い有機エレクトロルミネッセンス材料等の蒸発に好適な分子線源セルに関する。

【0002】

【従来の技術】 分子線エピタキシ装置と呼ばれる薄膜堆積装置は、高真空中に減圧可能な真空チャンバ内に半導体ウエハ等の基板を設置し、所要の温度に加熱すると共に、この基板の薄膜成長面に向けてクヌードセンセル等の分子線源セルを設置したものである。この分子線源セルの坩堝に収納した蒸発材料をヒータにより加熱して熔融、蒸発させ、これにより発生した蒸発分子を前記基板の薄膜成長面に入射し、その面に薄膜をエピタキシャル成長させて、蒸発材料の膜を形成する。

【0003】 このような薄膜堆積装置に使用される分子線源セルは、熱的、化学的に安定性の高い、例えば PBN (パイロリティック・ボロン・ナイトライド) 等からなる坩堝の中に蒸発材料を収納し、この蒸発材料を坩堝の外側に設けた電気ヒータで加熱し、これにより蒸発材料を熔融、蒸発させ、蒸発分子を発生させるものである。

【0004】 近年、ディスプレイや光通信等の分野で、有機エレクトロルミネッセンス素子 (有機 EL 素子) の研究、開発が進められている。この有機 EL 素子は、EL 発光能を有する有機低分子または有機高分子材料で発光層を形成した素子であり、自己発光型の素子としてその特性が注目されている。例えばその基本的な構造は、ホール注入電極上にトリフェニルジアミン (TPD) 等のホール輸送材料の膜を形成し、この上にアルミキノール錯体 (Alq₃) 等の蛍光物質を発光層として積層し、さらに Mg、Li、Cs 等の仕事関数の小さな金

属電極を電子注入電極として形成したものである。

【0005】

【発明が解決しようとしている課題】 前記のような有機 EL を形成する各層は、前述のような薄膜堆積装置を使用して形成される。ところが、特に有機 EL 膜を形成するための有機 EL 材料は、融点が低く、しかも熱伝導率が低い。このため、前述のような分子線源セルで加熱、蒸発しようとする、ヒータで加熱される坩堝の周壁に近い周囲の部分では、蒸発に必要な所要の温度が得られても、坩堝の中央側で温度が極端に低くなり、蒸発温度に満たない状態となる。

【0006】 このような状態では、坩堝に収納された蒸発材料のうち、坩堝の周壁に近い周囲の部分のみが蒸発され、坩堝の中央部にある蒸発材料が蒸発されずに残ってしまう。そのため、材料の歩留まりが悪いだけでなく、温度の不均一性による膜の欠陥等が生じやすい。

【0007】 本発明は、このような従来の分子線源セルにおける課題に鑑み、有機 EL 材料のような熱伝導率の低い蒸発材料でも、坩堝の中で効率良く伝熱できるようにし、これにより坩堝の中での温度勾配を小さくし、蒸発材料を効率よく蒸発して蒸発分子を発生することができるようすることを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】 前記の目的を達成するため、本発明では、坩堝 1 に蒸発材料 5 だけを収納することなく、化学的、熱的に安定しており、且つその蒸発材料 5 より熱伝導率の高い伝熱媒体 4 を収納したものである。これにより、ヒータ 3 の熱を前記の伝熱媒体 4 を介して坩堝 1 の内部にまで伝熱し、坩堝 1 の内部の蒸発材料 5 をも効率的に蒸発できるようにした。

【0009】 すなわち、本発明による分子線源セルは、蒸発材料 5 を加熱することにより、その蒸発材料 5 を熔融、蒸発して、固体表面に薄膜を成長させるための蒸発分子を発生するものであって、蒸発材料 5 を収納する坩堝 1 と、この坩堝 1 に収納された前記蒸発材料 5 を加熱する加熱手段とを有し、前記坩堝 1 に前記蒸発材料 5 と共に、熱的、化学的に安定しており、且つ前記蒸発材料 5 より熱伝導率の高い伝熱媒体 4 を収納したものである。例えば、伝熱媒体 4 としては、パイロリティック・ボロン・ナイトライド (PBN)、シリコンカーバイド、窒化アルミニウム等の高熱伝導材料からなるものが例示される。

【0010】 前記のような分子線源セルにおいて、蒸発材料 5 は熱伝導率が低く、ヒータ 3 の熱が十分伝熱できない場合であっても、伝熱媒体 4 がヒータ 3 の熱を伝熱し、坩堝 1 の内部まで熱を伝える。このため、坩堝 1 の周壁近くと中央部との温度差が小さくなり、坩堝 1 の内部の蒸発材料 5 をも容易に蒸発させることができる。

【0011】 他方、パイロリティック・ボロン・ナイトライド、シリコンカーバイド、窒化アルミニウム等の高

3

熱伝導材料からなる伝熱媒体 4 は、熱的、化学的に安定しており、ヒータ 1 による加熱では蒸発したり分解しないため、発生する蒸発分子に混じって膜の組成に影響を与えるようなことは無い。従って、目的の材料の成膜に支障を来すことはない。

【 0 0 1 2 】

【発明の実施の形態】次に、図面を参照しながら、本発明の実施の形態について、具体的且つ詳細に説明する。図 1 に本発明の一実施形態による分子線源セルの概略を示す。この図に示すように、上端に蒸気放出口 2 を有する坩堝 1 が設置され、この坩堝 1 の周囲にその内部の蒸発材料 5 を加熱するためのヒータ 3 が設けられている。坩堝 1 は、熱的、化学的に安定した材料で形成され、例えば前述のような PBN で作られている。図示の坩堝 1 は、蒸気放出口 2 の部分が括弧で示されて狭くなっており、その上端側が次第に太くなるようなテーパが形成されたホーン状のドラフト部 1 1 が形成されている。後述する伝熱媒体 4 と蒸発材料 5 を収納する坩堝 1 の蒸気放出口 2 より下の本体部分は、円筒形である。

【 0 0 1 3 】ヒータ 3 の外側には、そのヒータ 3 の熱を坩堝 1 側に反射するリフレクタ 6 が設けられている。このリフレクタ 6 や坩堝 1 は、フランジ 8 の上に立設されており、このフランジ 8 を介して図示しない真空チャンバの下部ポートに取り付けられ、分子線源セルが真空チャンバの内側に設置される。

【 0 0 1 4 】坩堝 1 の底面あるいは周囲には熱電対等の測温素子 7 の測温点が当てられ、ヒータ 3 による坩堝 1 の加熱温度が測定され、監視される。さらにフランジ 8 には、シャッタ軸 1 0 が軸支され、このシャッタ軸 1 0 の回転により開閉操作されるシャッタ 9 が坩堝 1 の蒸気放出口 2 を開閉する。シャッタ 9 を挟んで坩堝 1 の蒸気放出口 2 と対向するよう、その真上に基板ホルダ 1 2 に保持された半導体ウエハ、ITO 等の透明導電膜を形成したガラス等の基板 1 3 が配置される。

【 0 0 1 5 】このような分子線源セルにおいて、その坩堝 1 の中には蒸発材料 5 が収納される。さらに、この坩堝 1 には、前記蒸発材料 5 と共に、粒状の伝熱媒体 4 が収納されている。この伝熱媒体 4 は、熱的、化学的に安定しており、且つ蒸発材料 5 より熱伝導率の高いもので作られる。例えば伝熱媒体 4 は、坩堝 1 と同じ PBN、シリコンカーバイド或いは窒化アルミニウム等の高熱伝導材料で作られている。

【 0 0 1 6 】この伝熱媒体 4 は、坩堝 1 の中でその密度が均一になるよう分散して坩堝 1 の中に収納する。蒸発材料 5 の熱伝導率が低く、坩堝 1 の周壁に近い部分と中央部分とで温度差が大きくなりやすいときは、伝熱媒体 4 を坩堝 1 の中に密に収納する。他方、また蒸発材料 5 の熱伝導率がさほど低くなく、坩堝 1 の周壁に近い部分と中央部分とで温度差がそれ程大きくならないときは、伝熱媒体 4 を坩堝 1 の中に疎に収納する。伝熱媒体 4 と

4

蒸発材料 5 を坩堝 1 内に収納する容積比は、7 0 % : 3 0 % 前後が一般的である。

【 0 0 1 7 】このような分子線源セルでは、ヒータ 3 によって坩堝 1 を加熱すると、坩堝 1 を介して内部の伝熱媒体 4 が加熱され、この伝熱媒体 4 を介して蒸発材料 5 が加熱される。伝熱媒体 4 は蒸発材料 5 より熱伝導率が高いため、蒸発材料 5 だけでは坩堝 1 の中央にまで熱が伝わらない場合でも、この伝熱媒体 4 により坩堝 1 の中央まで熱が伝わり、その坩堝 1 の中央にある蒸発材料 5 も加熱して熔融、蒸発させる。これにより、坩堝 1 に収納された蒸発材料 5 が満遍なく加熱、熔融、蒸発される。

【 0 0 1 8 】また伝熱媒体 4 は、坩堝 1 と同様の PBN 等のように、熱的、化学的に安定した材料で作られているため、ヒータ 3 での加熱によって熔融、蒸発することはない。従って、坩堝 1 の蒸気放出口 2 から放射される蒸発分子の中に伝熱媒体 4 を形成する分子が含まれることはなく、結晶成長する膜の組成に影響を与えない。

【 0 0 1 9 】なお、蒸発材料 5 が EL 発光能を有する有機低分子または有機高分子材料である場合、その気化温度は、銅等の金属等比べて遙かに低く、大半は 2 0 0 ℃以下である。他方、耐熱温度も比較的 low、前記のような有機低分子または有機高分子材料の蒸発には、その気化温度以上、耐熱温度以下の温度で加熱する必要がある。

【 0 0 2 0 】伝熱媒体 4 を介して加熱され、気化した蒸発材料 5 は、坩堝 1 に充填した伝熱媒体 4 と蒸発材料 5 との表面から蒸発し始める。この蒸発により、伝熱媒体 4 の間に空隙が生じ、坩堝 1 の奥で蒸発した蒸気がこの伝熱媒体 4 の空隙を通過して上昇し、恰も坩堝 1 に充填した伝熱媒体 4 の表面から蒸発する状態となる。坩堝 1 内の伝熱媒体 4 の容積は 7 0 % 前後あるため、蒸発材料 5 が蒸発し、蒸発分子として坩堝 1 から放出されても、坩堝 1 内の収納物のレベルはあまり変わらない。そのため、前述した見かけの蒸発位置は低下することが無く、変わらない。また、蒸発材料 5 が蒸発し、それらが蒸発分子として坩堝 1 内から放出されても、坩堝 1 内には伝熱媒体 4 が残っているため、熱容量の減少も小さい。

【 0 0 2 1 】こうして蒸発材料 5 が熔融し、蒸発することで発生した蒸発材料 5 の蒸発分子は、蒸気放出口 2 から放出される。シャッタ 9 を開いた状態では、蒸気放出口 2 から放出された蒸発分子が基板 1 3 の表面上に飛来し、その基板 1 3 の表面上に凝着して薄膜を堆積させる。

【 0 0 2 2 】従来の円筒形の坩堝では、蒸発分子の放出口も円筒形であるため、いわゆる煙突効果により、坩堝の中心軸付近での蒸発分子の密度が極端に大きくなり、基板の中央部とその周辺部の膜厚の差が大きくなる。これを改善するため提案された逆円錐形の収納空間を有するコニカル形の坩堝では、上広がりのテーパにより蒸発

分子が広がりながら放出されるため、基板表面での膜厚の不均一性は改善される。しかし、蒸発材料の蒸発が進と、坩堝内の残りの蒸発材料の容積とその表面の面積が急激に小さくなる。このため、温度制御や蒸発の制御が極端に困難になる。

【0023】これに対し、図1により前述したような坩堝1では、蒸気放出口2の部分が括れていて狭くなっており、その上端の径が次第に大きくなるようなテーパを有するドラフト部11が形成されていることにより、蒸発材料5を蒸発したとき、蒸発分子が図1に二点鎖線で示すように広がりながら蒸発する。これにより、蒸気放出口2から放出される蒸発分子の流れが坩堝1の中心軸と直交する径方向にわたってほぼ均一となり、基板13の表面上に均一な膜厚の膜が形成できる。

【0024】しかも、蒸発材料5と伝熱媒体4を充填した坩堝1の本体部分は円筒形であるため、コニカル形の坩堝のような欠点が無い。さらに前述した通り、蒸発材料5と共に坩堝1に伝熱媒体4を収納したことにより、蒸発材料5が蒸発し、それらが蒸発分子として坩堝1内から放出されても、残った坩堝1の収納物の見かけの容積、つまり坩堝1内の収納物のレベルが低下することが無く、殆ど変わらない。また、坩堝1内の収納物の熱容量の変動は極めて小さい。このため、蒸発材料5の加熱温度の制御は蒸発分子の発生量の制御等が極めて容易である。

【0025】前述の例は、坩堝1の中に蒸発材料5と共に伝熱媒体4を分散して収納した例である。これに対して例えば、図2に示すように、粒状の伝熱媒体4をコアとして、その表面に蒸発材料5を被覆するようにして設け、これを坩堝1の中に収納してもよい。こうすることにより、ヒータ3で坩堝1を介して蒸発材料5を加熱したとき、コアとなる伝熱媒体4も同時に加熱されるので、坩堝1内部の温度分布が均一化され、その内部の蒸発材料5を満遍なく加熱し、溶融して蒸発することがで

きる。

【0026】次に、図3に示した本発明の他の実施形態による分子線源セルについて説明すると、この分子線源セルでも、坩堝1の括れた蒸気放出口2の先に上端にいくに従って内径が大きくなるようなテーパを有するドラフト部11を形成している。しかしこのドラフト部11を、前述の図1の実施形態のものより長く、且つそのテーパを緩く形成している。このようなドラフト部11により、蒸気放出口2から放出された蒸発分子に指向性が与えられ、限られた方向において密度が均一な蒸発分子の流れが形成される。これにより、基板上の限られた成膜面に効率良く、且つ均一に薄膜を成長させることができる。

【0027】

【発明の効果】以上説明した通り、本発明による分子線源セルでは、熱伝導率が低い蒸発材料5でも、坩堝1内で均一な温度分布に加熱して溶融、蒸発することができるので、蒸発材料5を歩留まりよく蒸発して固体の表面に結晶成長させることができる。これにより、材料の使用効率を高めることができるだけでなく、蒸発材料5の温度ムラがなくなり、結晶成長により形成された膜の品質を高めることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施形態による分子線源セルを示す概略縦断側面図である。

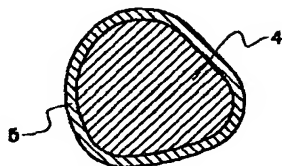
【図2】同分子線源セルの坩堝に収納する蒸発材料と伝熱媒体の形態の例を示す断面図である。

【図3】本発明の他の実施形態による分子線源セルを示す概略縦断側面図である。

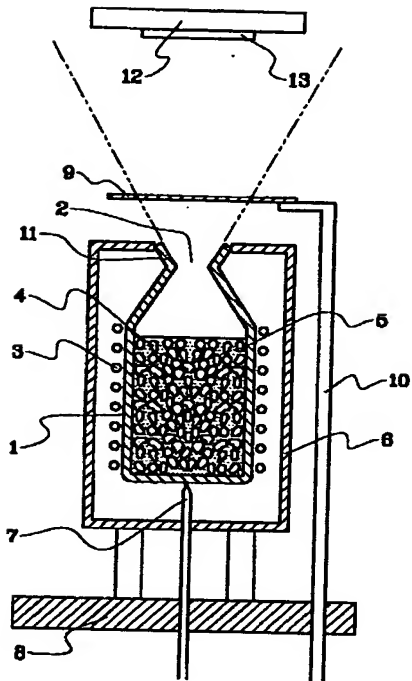
【符号の説明】

- 1 坩堝
- 3 ヒータ
- 4 伝熱媒体
- 5 蒸発材料

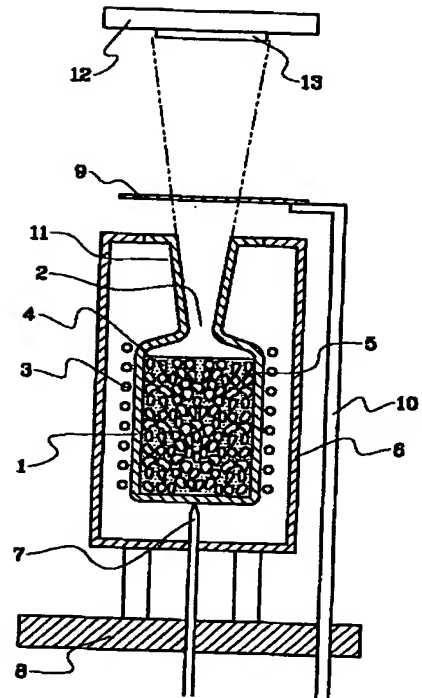
【図2】



【図 1】



【図 3】



フロントページの続き

(72)発明者 水上 時雄
神奈川県藤沢市桐原町 3 番地 株式会社ア
イメス内
(72)発明者 齋藤 建勇
茨城県ひたちなか市勝倉1316番地 3 株式
会社日本ビーテック内

(72)発明者 城戸 淳二
奈良県北葛城郡広陵町馬見北 9-4-3
Fターム(参考) 4G077 AA03 BF00 DA07 EG01 HA20
SC12
5F103 AA04 BB04 DD25 LL01 RR01